

Partial English Translation of
Japanese Patent Laying-Open No. 61-270258

5 1. Title of the Invention

Polycrystalline Sintered Diamond Object and Manufacturing
Method Thereof

2. Scope of Claims for Patent

10 1. A polycrystalline sintered diamond object, comprising:
diamond;

a carbide of at least one metal selected from the group of Fe, Co, Ni,
and Mn, that serves as a first carbide; and

15 a carbide of a metal producing, as a result of synthesis, a
non-stoichiometric compound as a compound of metal and carbon, that
serves as a second carbide.

2. The polycrystalline sintered diamond object according to claim 1,
wherein

a carbide of Fe is used as the first carbide.

20 3. The polycrystalline sintered diamond object according to claim 1
or 2, wherein

a carbide of at least one selected from the group of Y, Ti, Zr, Hf, Ta,
Nb, V, and W is included as the second carbide.

25 ... (omitted) ...

Japan Patent Office
Patent Laying-Open Gazette

Patent Laying-Open No. 61-270258
Date of Laying-Open: November 29, 1986
International Class(es): C04B 35/52

(5 pages in all)

Title of the Invention: Polycrystalline Sintered Diamond Object
and Manufacturing Method Thereof

Patent Appln. No. 60-110131
Filing Date: May 24, 1985
Inventor(s): Shigeharu NAKA
Hideaki ITOH

Applicant(s): NGK INSULATORS, LTD.

(transliterated, therefore the
spelling might be incorrect)

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭61-270258

⑬ Int. Cl.⁴
C 04 B 35/52

識別記号 庁内整理番号
7158-4G

⑭ 公開 昭和61年(1986)11月29日

審査請求 未請求 発明の数 2 (全5頁)

⑮ 発明の名称 多結晶ダイヤモンド焼結体及びその製造法

⑯ 特 願 昭60-110131

⑰ 出 願 昭60(1985)5月24日

⑱ 発 明 者 中 重 治 名古屋市千種区霞ヶ丘1丁目11番地の25

⑲ 発 明 者 伊 藤 秀 章 名古屋市昭和区福原町3丁目14番地の1 ライオンズマン
ション本山南103号

⑳ 出 願 人 日本碍子株式会社 名古屋市瑞穂区須田町2番56号

㉑ 代 理 人 弁理士 杉村 暁秀 外1名

明 細 書

1. 発明の名称 多結晶ダイヤモンド焼結体及
びその製造法

2. 特許請求の範囲

1. ダイヤモンドと、第1の炭化物としてFe、Co、Ni、Mnの中から選ばれた少なくとも1種以上の金属の炭化物、及び第2の炭化物として金属と炭素との化合物として不定比化合物を合成する金属の炭化物より構成されることを特徴とする多結晶ダイヤモンド焼結体。
2. 第1の炭化物として、Feの炭化物を用いたことを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の多結晶ダイヤモンド焼結体。
3. 第2の炭化物として、Y、Ti、Zr、Hf、Ta、Nb、V、Wの中から選ばれた少なくとも1種以上の炭化物を含むことを特徴とする特許請求の範囲第1項または第2項記載の多結晶ダイヤモンド焼結体。
4. 高純度黒鉛または高純度黒鉛とダイヤモンド

ドに、第1の金属としてFe、Co、Ni、Mnから選ばれた少なくとも1種以上の金属及び第2の金属として不定比炭化物を合成する金属の少なくとも1種以上を混合し、該混合物を予備処理した後、圧力6GPa以上、温度1800~1800℃の高温高圧処理することを特徴とする多結晶ダイヤモンド焼結体の製造法。

5. 予備処理として真空脱気することを特徴とする特許請求の範囲第4項記載の多結晶ダイヤモンド焼結体の製造法。
6. 予備処理として真空脱気した後、Ar雰囲気中で加熱することを特徴とする特許請求の範囲第4項記載の多結晶ダイヤモンド焼結体の製造法。
7. 第1の金属としてFeを用いたことを特徴とする特許請求の範囲第4項ないし第6項のいずれかに記載の多結晶ダイヤモンド焼結体の製造法。
8. 第2の金属として、Y、Ti、Zr、Hf、

Ta, Nb, V, Wの中から選ばれた少なくとも1種以上の炭化物を用いたことを特徴とする特許請求の範囲第4項ないし第7項のいずれかに記載の多結晶ダイヤモンド焼結体の製造法。

3. 発明の詳細な説明 (産業上の利用分野)

本発明は多結晶ダイヤモンド焼結体及びその製造法、特に溶媒-触媒法による多結晶ダイヤモンド焼結体及びその製造法に関するものである。

(従来の技術)

ダイヤモンドは炭素の同素体で、炭素原子が共有結合した正四面体を基本としており、その強固な共有結合により現存の物質中最大の硬度を有し、また純粋なものは常温において鋼の約5倍の熱伝導率を持ち、電気抵抗率は $10^{-11} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上の絶縁体である。現在、その硬度を生かして例えばバイト等の工具として種々の分野で使用されているが、天然のものは非常に高価であるため工業的に合成する方法が各方面で開発されている。

移行金属のみを使用する溶媒-触媒法では、未だ転換率が良好で密度および硬度の高い良質な多結晶ダイヤモンドを得ることができない欠点があった。

本発明の目的は上述した不具合を解消して、従来品に比べて密度および硬度が高く良質であるとともに安価な多結晶ダイヤモンド及びその製造法を提供しようとするものである。

(問題点を解決するための手段)

本発明の多結晶ダイヤモンドは、ダイヤモンドと、第1の炭化物としてFe, Co, Ni, Mnの中から選ばれた少なくとも1種以上の金属の炭化物、及び第2の炭化物として金属と炭素との化合物として不定比化合物を合成する金属の炭化物より構成されることを特徴とするものである。

さらに、本発明の多結晶ダイヤモンドの製造法は、高純度黒鉛または高純度黒鉛とダイヤモンドと、第1の金属としてFe, Co, Ni, Mnから選ばれた少なくとも1種以上の金属及び第2の金属として不定比炭化物を合成する金属の少なくとも1種以上を混合し、該混合物を予備処理した

従来、工業的な多結晶ダイヤモンド焼結体の合成方法としては、超高温高圧下で黒鉛を直接多結晶ダイヤモンドに転換する直接転換法と、高温高圧下で溶融金属溶媒と触媒を用い黒鉛から多結晶ダイヤモンドを得る溶媒-触媒法が知られている。(発明が解決しようとする問題点)

上述した方法のうち、直接転換法では11GPa, 3300Kという非常に過酷な条件が必要な欠点があり、現在工業的には用いられていない。

これに対して溶媒-触媒法は、黒鉛と適当な溶媒-触媒とを接触させて溶媒-触媒から融体を生じ、溶媒-触媒作用を呈する温度が熱力学的にダイヤモンドが安定になるように加圧、加熱処理を行なってダイヤモンドを得ているため、直接転換法に比べて比較的低い条件下でダイヤモンド合成が可能であり、現在工業的に用いられている。このときの溶媒-触媒としては、3d遷移金属のニッケル、コバルト、鉄、マンガンが知られている。

しかしながら上述した溶媒-触媒として3d遷

移、圧力 6GPa以上、温度1600~1800℃の高圧高温処理することを特徴とするものである。

なお、ここで不定比化合物とは化学量論組成からはずれた化合物のことをいう。また、混合物の予備処理とは 10^{-5} Torr程度の真空脱気処理又は、真空脱気した後、さらにAr雰囲気中 400℃以上で加熱処理のいずれかをいう。

(作用)

本発明は、従来溶媒-触媒法で使用される溶媒-触媒である3d遷移金属の他に、第2の炭化物として金属と炭素との化合物として不定比化合物を合成する金属。例えばY, Ti, Zr, Hf, Ta, Nb, V, Wの中から選ばれた少なくとも1種以上の炭化物を加えることにより、品質の良好な多結晶ダイヤモンドを得ることができることを新規に見出したことによる。

なお、第1の炭化物は溶媒-触媒作用を生じさせるための物質で、第2の炭化物は粒成長抑制効果をもたせ直接結合を助長することによって、多結晶ダイヤモンドの各結晶の結晶粒を小さくして

硬度をより高めるための物質である。

(実施例)

以下、本発明を詳細に説明する。

まず、炭素源としては高純度化した天然黒鉛 (285~325メッシュ) を使用した。この炭素源と後述する第1表にそれぞれ記載された割合の第一の金属と第二の金属を準備した後、これらの粉末をV型混合器を用いて混合した。次に、後述する第1表に示すように所定の真空脱気とアルゴン処理を組み合わせた予備処理を行なって、本発明品1~10および比較例11~15の出発原料を得た。このときアルゴン処理としては、 1×10^{-3} torr. のアルゴン雰囲気中で1000℃、1時間の処理を行なった。その後、得られた出発原料を第1表に示す種々の温度および圧力で約5~30分間ガードル型高圧装置による高温高圧処理を行なって、多結晶ダイヤモンド焼結体を得た。

第1図は本発明で使用するガードル型高圧装置の要部を示す線図である。第1図において、円錐角90°のWC-CO系超合金製のアンビル1とシ

リンダー2を用い、圧縮性ガスケットとしてパイロフィライトと銅を積み重ねた複合ガスケット3を使用した。また、圧力効率を高め試料量を増加させるため、WC-CO系超合金製ディスク4、5を重ねて多段効果を利用した。圧力室としては、パイロフィライト製のホルダー6内に、SKH-9製ディスク7、加熱用の黒鉛プレート8および黒鉛ヒータ9さらに絶縁性の焼成パイロフィライト10、11を設け、その中に試料12を配置した。加熱は上下のアンビル間に交流電流を通じ、黒鉛ヒータ9により加熱する円接加熱法を用いた。

上述したようにして作製した本発明品1~10および比較例11~15の各々の多結晶ダイヤモンド焼結体について、粒径を測定すると共に各焼結体をWC-10%CO合金によって作製された規格のTNP 332の刃先に銀ロー付けして、下記の条件によって切削試験を行なった。その結果を第1表に示す。

旋削による切削試験条件

被削材 SKH 3 (HRc59~62焼入れ鋼)

切削速度 50 m/min

切込み量 0.3mm

送り量 0.1mm/rev

切削時間 20 min

第1表における切削試験の結果は、試料の表面状態、切刃におけるチッピングの有無、その大きさにより評価して良好なものからそれぞれA、B、C、Dで示した。工具等に用いられるダイヤモンド焼結体としては、高硬度でかつ粒径が小さいほど望ましい。

第 1 表

実施例	第一の金属と添加量 (wt%)	第二の金属と添加量 (wt%)	予備処理条件	高温高圧処理		焼結体特性	
				温度 (°C)	圧力 (GPa)	粒径 (μm)	切削試験結果*
本発明品	1 Fe10	Ti10	真空脱気+Ar処理	1700	8	3~5	A
	2 Fe10+Co2	Y5	真空脱気	1600	10	3~5	B
	3 Fe10+Ni2	Zr10	"	1750	8	3~5	A
	4 Fe10+Ni2	Hf3	真空脱気+Ar処理	1800	7	5~7	B
	5 Fe10	V5	"	1700	7	4~6	B
	6 Fe10+Co2	W2	"	1650	9	3~5	B
	7 Fe10+Mo2	Ti10+Ta2	"	1750	8	4~6	B
	8 Fe10	Ti10+Nb2	真空脱気	1650	7	6~8	B
	9 Fe7	Ti13	真空脱気+Ar処理	1750	6	7~9	B
	10 Fe13	Ti7	"	1700	7	4~6	A
比較例	11 Fe5+Co5	Y5	なし	1600	8	6~8	C
	12 Fe10	Ti10	真空脱気	1550	6	10~13	D
	13 Fe10	Zr10	真空脱気+Ar処理	1700	5	15~20	C
	14 Fe20	なし	"	1700	8	20~50	D
	15 Fe10	B10	"	1700	7	ダイヤモンド生成せず	-

*A>B>C>D

第1表から明らかなように、本発明の第一の金属と第二の金属を含み予備処理の条件を満たすと共に、高温高圧処理における温度および圧力の条件を満たす本発明品 1~10のみが、粒径が小さく高密度で高硬度の良質な多結晶ダイヤモンド焼結体を得ることができた。

また、各種の特性を測定すると共に、得られた多結晶ダイヤモンド焼結体の各々について、沸騰王水中に1時間浸漬した後SEM写真を撮影して比較した。第2図(a)、(b)はそれぞれ、本発明のNo. 1および比較例のNo. 14の微細組織を示すSEM写真である。第2図から明らかなように、本発明の範囲であるNo. 1のSEM写真からは結晶粒径が小さく、ダイヤモンド粒の直接結合による強固な焼結体を観察できるのに対し、比較例ではダイヤモンドの粒成長が見られ、粒間の結合も充分でないことがわかった。

さらに、従来添加効果があると考えられていたBの添加は、活性なB、Cの生成を導き、良好な性状の多結晶ダイヤモンド焼結体を得ることがで

きないことがわかった。

本発明は上述した実施例にのみ限定されるものではなく、幾多の変形、変更が可能である。例えば、上述した実施例では炭素源として高純度天然黒鉛を用いたがもちろん高純度でなくとも良いと共に、価格のことを考えなければ黒鉛の中にダイヤモンド粉末が混入されていても本願の目的とするより良質な多結晶ダイヤモンド焼結体を得ることができる。

(発明の効果)

以上詳細に説明したところから明らかなように、本発明の多結晶ダイヤモンドおよびその製造法によれば、従来品と比較して粒径が小さく密度および硬度が高く良質であると共に安価な多結晶ダイヤモンドを得ることができる。

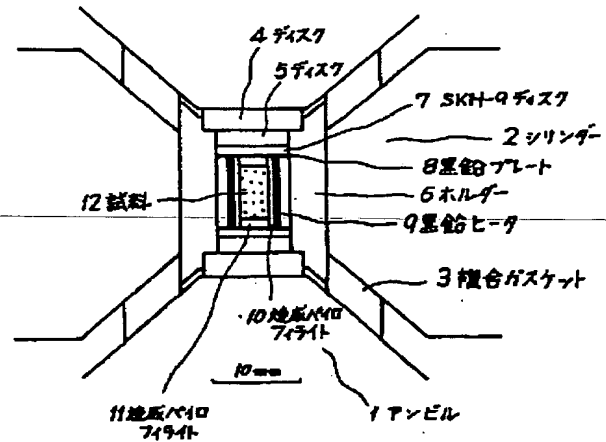
4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明で使用するガードル型高圧装置の要部を示す図、

第2図(a)、(b)はそれぞれ本発明品および比較例の結晶の構造のSEM写真である。

- 1…アンビル 2…シリンダー
 3…複合ガスケット
 4, 5…WC-Co 製超合金製ディスク
 6…パイロフィライト製ホルダー
 7…SKH-9 製ディスク
 8…銀鉛プレート 9…銀鉛ヒータ
 10, 11…焼成パイロフィライト
 12…試料

第 1 図



特許出願人 日本碍子株式会社
 代理人 弁護士 杉 村 曉 秀
 同 弁護士 杉 村 興 作

第 2 図

(a)
 本発明品



(b)
 比較品



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.